

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

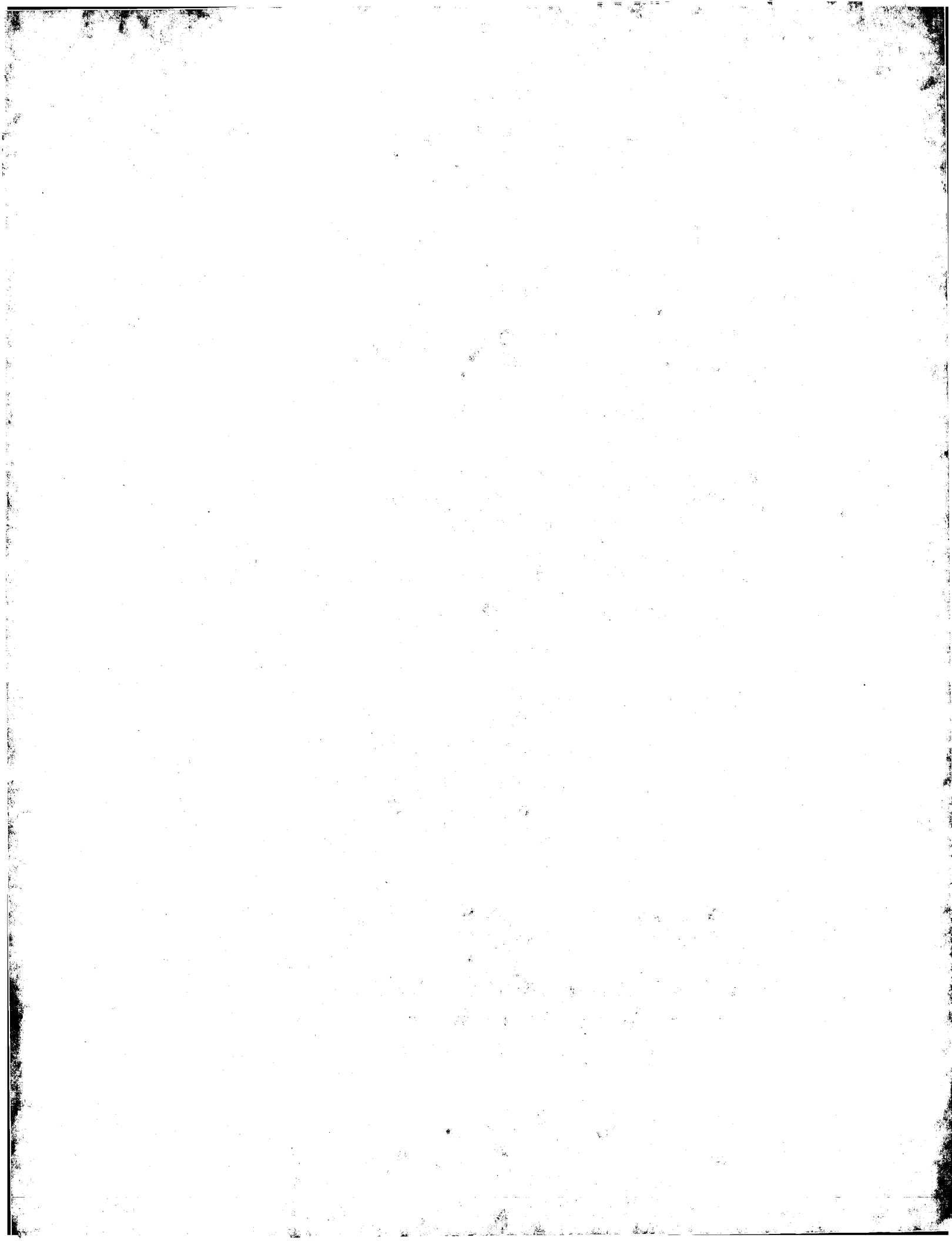
Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

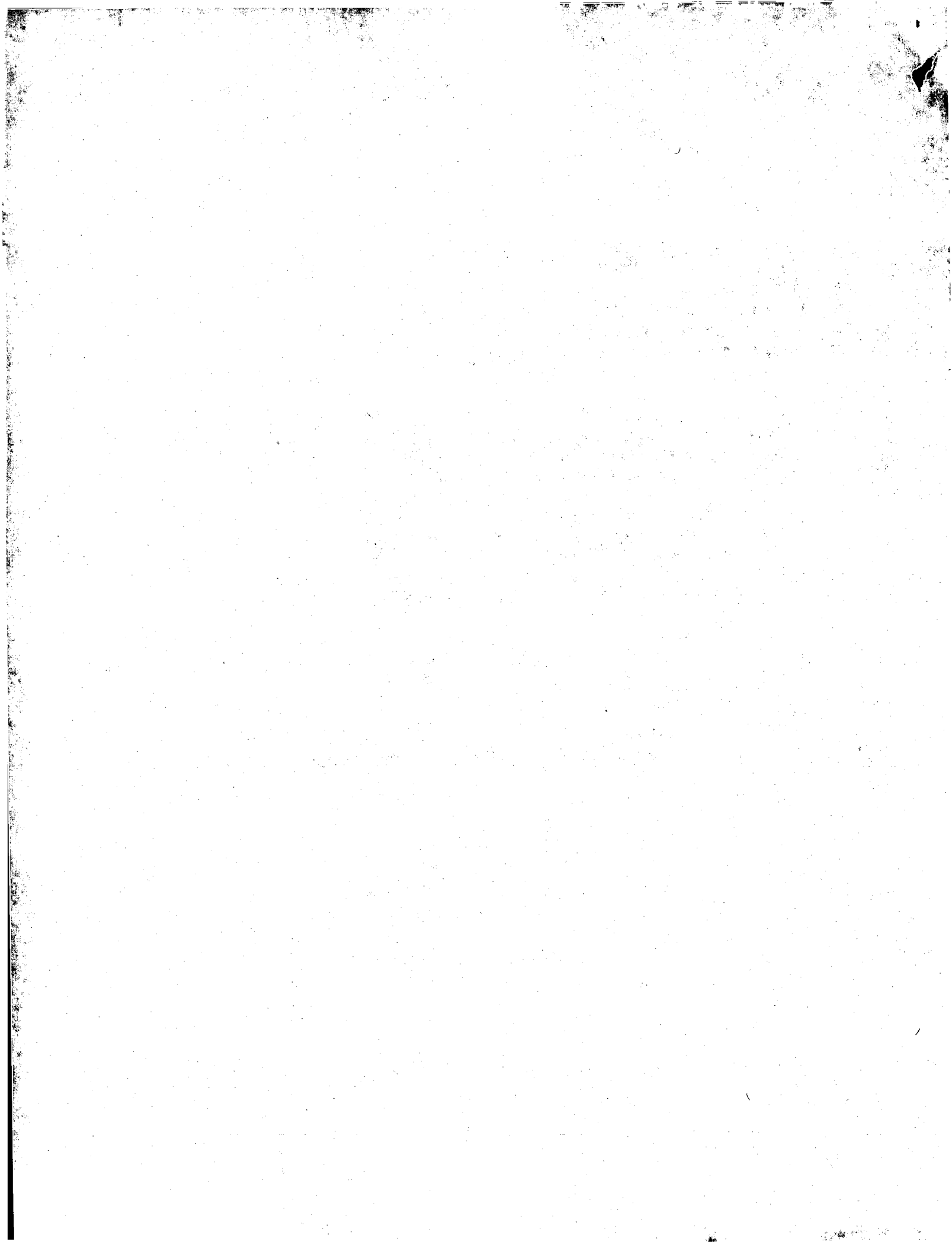
**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

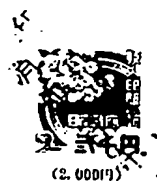


**XP-002253231****AN - 1976-42485X [25]****CPY - DENK****DC - L02 L03 U12 V06****FS - CPI;EPI****IC - C04B35/00 ; H01L41/18****MC - L02-G07B L03-D01B****PA - (DENK ) TDK ELECTRONICS CO LTD****PN - JP49033907 A 19740328 DW197623 000pp****- JP53031279B B 19780901 DW197839 000pp****PR - JP19720075705 19720728****XIC - C04B-035/00 ; H01L-041/18**

**AB - J49033907** Ferroelec. piezoelec. ceramic material have the formula  $(\text{Li}_x\text{Na}_{1-x})(\text{Ta}_y\text{Nb}_{1-y})\text{O}_3$  and compsn. that fall within the area defied by points (x,y) in teh phase diagram for the system  $\text{NaNbO}_3\text{-NaTaO}_3\text{-LiTaO}_3\text{-LiNbO}_3$ , as 0.40, 0.01; 0.01, 0.01; 0.01, 0.40; 0.20, 0.40; 0.35,0.35; 0.40, 0.20. These materials have a sufficiently large mech. quality factors ( $Q_m$ ) dielec. consts. (epsilon, epsilo 0) which vary over a wide rage, sufficiently low resonance impedance, extremely low temp. coeffts. of epsilon/epsilon 0 and resonance frequency, and are useful in ceramic filters of integrated circuits.

**IW - FERROELECTRIC PIEZOELECTRIC CERAMIC LITHIUM SODIUM TANTALATE NIOBATE****IKW - FERROELECTRIC PIEZOELECTRIC CERAMIC LITHIUM SODIUM TANTALATE NIOBATE****NC - 001****OPD - 1972-07-28****ORD - 1974-03-28****PAW - (DENK ) TDK ELECTRONICS CO LTD****TI - Ferroelectric piezoelectric ceramics - of lithium (sodium) tantalate (niobate)**





(2,000円)

## 特 許 願

昭和47年7月28日

特許庁長官 三 宅 幸 夫 殿

1. 発明の名称 強誘電性圧電磁器材料

2. 発明者

東京都千代田区内神田2丁目14番6号  
東京電気化学工業株式会社

氏 名 中 間 一 (外1名)

3. 特許出願人

郵便番号 101

住 所 東京都千代田区内神田2丁目14番6号

名 称 (306) 東京電気化学工業株式会社

代表者 森 野 福 次 郎



## 明 細 書

1 発明の名称

強誘電性圧電磁器材料

2 特許請求の範囲

 $(Li_x \cdot Na_{1-x}) \cdot (Ta_y \cdot Nb_{1-y})O_3$  で構成され、  
xとyの値がそれぞれ

	x	y
(A)	0.40	0.01
(B)	0.01	0.01
(C)	0.01	0.40
(D)	0.20	0.40
(E)	0.35	0.35
(F)	0.40	0.20

で表わされる組成点で囲まれる範囲内の組成を  
有する強誘電性圧電磁器材料。

3 発明の詳細な説明

本発明は、強誘電性圧電磁器材料に関する。

近年、圧電振動子の用途拡大により、その要  
求せられる特性も多岐にわたり、きびしい圧電  
特性が所望せられる昨今、さらにすぐれた圧電

① 日本国特許庁

## 公開特許公報

① 特開昭 49-33907

④ 公開日 昭49.(1974)3.28.

② 特願昭 47-75705

② 出願日 昭47.(1972)7.28

審査請求 有 (全4頁)

庁内整理番号

⑤ 日本分類

6730 41

20(B)C129

6579 41

20(B)C14

2112 57

62 C23

特性を有する圧電材料の開発が期待されている。

たとえば、テレビジョン、ラジオ、あるいは  
通信機用機器のIC化の一端として、インダク  
タンスの問題、すなわちコイルを使用しない機  
器の問題が活発に研究されて居り、この中でも  
LCフィルタに圧電セラミックフィルタが置換  
わることは必至の状況である。この場合、フィルタの種類および特性も多種  
多様であり、要求される特性も高い $Q_d$ 、高い $\gamma$   
で、かつ共振インピーダンスおよび共振周  
波数の温度係数が充分に小さいものが要求  
されている。また、通<sub>透</sub>用周波数についても  
15KHz ~ 60MHz程度まで多種多様なものが要求  
されている。本発明は、かかる要望にこたえるべくなされ  
たものであり、ペロブスカイト構造を有する  
 $NaNbO_3$ および $NaTaO_3$ と、イルメナイト構造を  
有する $LiNbO_3$ および $LiTaO_3$ の4成分固溶体  
からなる主成分を有する。すなわち、本発明は一般式  $(Li_x \cdot Na_{1-x}) \cdot$

( $Ta_x Nb_{1-x} O_5$ ) でしめされ、 $x$ と $y$ の値がそれぞれ

	$x$	$y$
(A)	0.40	0.01
(B)	0.01	0.01
(C)	0.01	0.40
(D)	0.20	0.40
(E)	0.35	0.35
(F)	0.40	0.20

でしめされる組成比で囲まれる組成範囲内の組成を有する強誘電性圧電材料である。

本発明の組成による磁器圧電体は、セラミックスフィルタ用として好適であり、機械的 $Q$ 値が十分に大きく、誘電率 $\epsilon/\epsilon_0$ は広い範囲のものが得られ、共振インピーダンスは充分に低く、共振周波数、誘電率( $\epsilon/\epsilon_0$ )の温度係数が広い組成範囲にわたり非常に小さく、かつ安定な特性を有するものである。

以下、本発明をさらに明確にするために、実施例をあげて、詳細に説明する。

#### 実施例

本発明の圧電磁器材料を得るための出発原料粉末としては特にことわらない限り  $Li_2O_3$ ,  $Na_2CO_3$ ,  $Nb_2O_5$ ,  $Ta_2O_5$  を用い、各粉末を所定量だけ秤量し、メタノールによるボールミルで混合処理した。

ついで、 $900^\circ C$ で2時間空気雰囲気中で焼成した。さらにメタノールによるボールミルで粉砕混合した後、所定量のバインダーを加えて  $15 \text{ ton/cm}^2$  の成形圧力で直径  $15 \text{ mm}$ 、厚さ  $1.0 \text{ mm}$  の円板に加圧成形する。

この円板を  $1100^\circ C \sim 1300^\circ C$  の範囲の温度で2時間空気雰囲気において焼結させた。

このようにして得た磁器を圧電体として用いる場合には、周知の手段たとえば一對の Ag 電極を円板の両面に設け、 $150 \sim 500^\circ C$  のシリコンオイル中に入れて、電極間に直流電界  $3 \sim 6 \text{ KV/mm}$  を1時間印加して分極する。

このようにして得られた圧電磁器は、24時間放置の後圧電性を評価するために径方向振動

第 1 表

試料	$x$ (モル)	$y$ (モル)	$\epsilon$	$\tan \delta$ (%)	$K_t$ (%)	$K_p$ (%)	$Q_m$	$fr \times 10^4$ (cps/cm)
1	0.01	0.01	89	1.6	30.2	20.8	1320	-7.4
2	0.01	0.10	102	0.7	44.0	23.0	1500	-
3	0.01	0.20	120	0.8	43.0	22.5	1600	-
4	0.01	0.30	150	0.9	40.0	21.0	1650	-
5	0.01	0.40	155	0.9	39.0	20.5	1600	-
6	0.05	0.10	90	1.4	44.9	22.0	1500	-3.5
7	0.05	0.20	115	1.4	43.0	21.5	1650	-2.0
8	0.05	0.30	165	1.4	40.6	20.0	1820	-3.4
9	0.05	0.40	182	1.4	38.5	19.8	1890	-3.1
10	0.10	0.01	90	1.8	48.9	24.8	1120	-10.9
11	0.10	0.10	100	1.5	46.5	22.5	1300	-4.7
12	0.10	0.15	118	1.0	44.8	21.0	1400	-5.8
13	0.10	0.20	120	1.0	43.2	20.9	1600	-4.3
14	0.10	0.25	126	1.3	40.5	20.0	1650	-
15	0.10	0.30	194	1.4	35.5	20.0	1900	-3.0
16	0.10	0.40	210	1.4	30.6	20.6	2000	-
17	0.12	0.01	120	1.4	48.9	23.0	1200	7.4

における電気機械結合係数 $K_p$ 厚み方向の電気機械結合係数 $K_t$ および機械的品質係数 $Q_m$ を測定した。測定は I, R, E の標準回路の方法に従った。なお $K_p$ の計算は共振( $fr$ )および反共振( $fa$ )から計算し、また誘電率 $\epsilon$ および誘電体損失( $\tan \delta$ )の測定は  $1 \text{ KHz}$  の周波数で行なった。

第1表に、このようにして得られた試料の種類組成における圧電的諸定数を示した。

第1表において明らかなように極めて高い $K_p$ ,  $K_t$ を示すほか、本発明の圧電磁器材料の組成範囲では、任意に組成比を変化させることにより $Q_m$ や $\epsilon/\epsilon_0$ ,  $\tan \delta$  の値も広い範囲にわたって調整することができる。

$\Delta$	x (モル)	y (モル)	a	$\tan \delta$ (%)	$K_t$ (%)	$K_p$ (%)	$Q_m$	fr. TC (ppm/°C)
18	0.12	0.10	131	1.8	445	210	1550	-53
19	0.16	0.01	160	1.6	407	210	1550	-26
20	0.16	0.10	150	2.0	390	202	1750	-87
21	0.20	0.01	211	1.2	325	125	1260	-97
22	0.20	0.10	280	0.9	450	252	980	64
23	0.20	0.20	320	1.6	332	210	1210	-
24	0.20	0.30	410	1.8	301	198	1320	-65
25(0)	0.20	0.40	420	2.0	285	181	1390	-
26	0.25	0.10	325	1.0	406	235	1450	-51
27	0.30	0.10	346	1.8	341	202	1620	-28
28	0.30	0.20	396	1.8	316	205	1520	-
29	0.30	0.30	405	1.6	306	202	1810	-
30(0)	0.35	0.35	400	1.6	286	179	1910	-
31(0)	0.40	0.01	468	2.0	212	135	2000	-
32	0.40	0.10	424	1.1	205	165	1880	-53
33(0)	0.40	0.20	415	1.0	125	158	1720	-

特開 49-33907 (3)

第1表よりあきらかなごとく、本発明になる圧電磁器材料は、従来の各種圧電磁器材料に比較してすぐれた特性値を有していることがわかる。

すなわち、 $\epsilon$ で90~470、 $\tan \delta$ で0.7~2.0%、 $K_t$ で20~49%、 $K_p$ で1.4%~2.5%、 $Q_m$ で1000~2000なるすぐれた特性を示し、かつfr. TCのきわめて小さいものである。

すなわち、特に高周波用圧電磁器材料として $\epsilon/\delta$ が100程度でも $K_t$ が40~50%と大なる値を示し、かつfr. TCがきわめて小さい値であり、多くの特徴を有していることがわかる。

第1図は、本発明の圧電磁器材料の組成範囲を示す図元図であり、図中の番号は第1表の試料番号に対応している。

本発明の圧電磁器材料は、組成点A、B、C、D、E、Fで形成される多角形A-B-C-D-E-Fの範囲内の組成を有するものである。この範囲外においては、得られる磁器は二相の

混相になり、かつ分相も困難となり、所定の特性値を示さなくなる。

したがって、本発明の圧電磁器材料の組成範囲を第1図の多角形A-B-C-D-E-Fの範囲内に限定するものである。

以上、詳細に説明したように $(Li_{1-x}Na_x)(Ta_yNb_{1-y})O_3$ で形成された本発明の圧電磁器材料は、すぐれた特性を示すものである。

すなわち、 $\epsilon$ で90~470、 $\tan \delta$ で0.7~2.0%、 $K_t$ で20~49%、 $K_p$ で1.4%~2.5%、 $Q_m$ で1000~2000の範囲で任意の特性のものが得られる。

また、かかる諸特性を適宜調整することができ、 $\tan \delta$ もきわめて小さいものであり、広帯域セラミックフィルタ用磁器など、きわめて広い応用分野のあるすぐれた圧電磁器材料を提供し得るものである。

#### 4 図面の簡単な説明

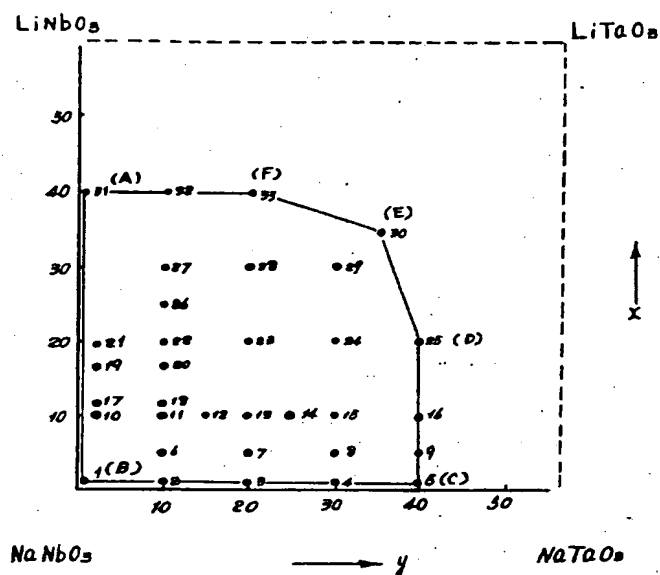
第1図は本発明の圧電磁器材料の組成図であ

る。

特許出願人 東京電気化学工業株式会社

代表者 森 野 初太郎

図 1



特開 49-33907(4)

4. 添附書類の目録

(1) 出願審査請求書	1 通
(2) 明 細 書	1 通
(3) 図 面	1 通
(4) 願 審 副 本	1 通

5. 前編以外の発明者 1 字訂正

住所 東京都千代田区内神田 2 丁目 14 番 6 号  
東京電気化学工業株式会社 内  
氏名 鶴 田 正 道